

DERWENT-ACC-NO: 2001-112532

DERWENT-WEEK: 200434

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Separator for solid-polymer fuel cell includes fluid channels through which hydrogen and oxygen gases pass between ribs on a substrate

INVENTOR: KATO, H; MORIO, Y

PATENT-ASSIGNEE: IBIDEN CO LTD[IBIG]

PRIORITY-DATA: 2000JP-0165980 (June 2, 2000) , 1999JP-0189005 (July 2, 1999)

PATENT-FAMILY:

| PUB-NO          | PUB-DATE         | LANGUAGE | PAGES | MAIN-IPC    |
|-----------------|------------------|----------|-------|-------------|
| JP 3530462 B2   | May 24, 2004     | N/A      | 014   | H01M 008/02 |
| WO 200103214 A1 | January 11, 2001 | J        | 040   | H01M 008/02 |
| JP 2001076748 A | March 23, 2001   | N/A      | 014   | N/A         |

DESIGNATED-STATES: KR US AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE

APPLICATION-DATA:

| PUB-NO         | APPL-DESCRIPTOR | APPL-NO        | APPL-DATE     |
|----------------|-----------------|----------------|---------------|
| JP 3530462B2   | N/A             | 2000JP-0165980 | June 2, 2000  |
| JP 3530462B2   | Previous Publ.  | JP2001076748   | N/A           |
| WO 200103214A1 | N/A             | 2000WO-JP04098 | June 22, 2000 |
| JP2001076748A  | N/A             | 2000JP-0165980 | June 2, 2000  |

INT-CL (IPC): H01M008/02, H01M008/10

ABSTRACTED-PUB-NO: WO 200103214A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - A separator (2) for a relatively low-cost, precision solid-polymer fuel cell includes a substrate (11) and ribs (12). The ribs are formed by printing conducting material on both sides of the substrate. A fluid channel (13) is formed between adjacent ribs. Hydrogen gas and oxygen gas are passed through the fluid channels.

USE - None given.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The diagram shows a separator.

Separator 2

Substrate 11

Ribs 12

Fluid channel 13

CHOSEN-DRAWING: Dwg.2/13

TITLE-TERMS: SEPARATE SOLID POLYMER FUEL CELL FLUID CHANNEL THROUGH  
HYDROGEN  
OXYGEN GAS PASS RIB SUBSTRATE

DERWENT-CLASS: L03 X16

CPI-CODES: L03-E04;

EPI-CODES: X16-C01C; X16-F02;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C2001-033544

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N2001-082569

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年1月11日 (11.01.2001)

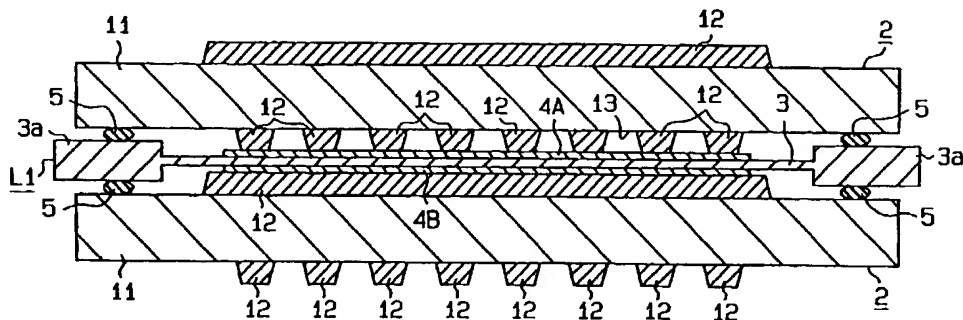
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/03214 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10 Hideki [JP/JP]. 森尾泰則 (MORIO, Yasunori) [JP/JP];  
〒503-8503 岐阜県大垣市青柳町300番地 イビデン株  
(21) 国際出願番号: PCT/JP00/04098 式会社 青柳工場内 Gifu (JP).  
(22) 国際出願日: 2000年6月22日 (22.06.2000) (74) 代理人: 恩田博宣 (ONDA, Hironori); 〒500-8731 岐阜  
(25) 国際出願の言語: 日本語 県岐阜市大宮町2丁目12番地の1 Gifu (JP).  
(26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): KR, US.  
(30) 優先権データ: (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,  
特願平11/189005 1999年7月2日 (02.07.1999) JP DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  
特願2000/165980 2000年6月2日 (02.06.2000) JP  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): イビデ 添付公開書類:  
ン株式会社 (IBIDEN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒503-8604 ー 国際調査報告書  
岐阜県大垣市神田町二丁目1番地 Gifu (JP). 2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
(72) 発明者; および 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 加藤秀樹 (KATO, のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: SEPARATOR OF SOLID-POLYMER FUEL CELL, METHOD OF MANUFACTURE THEREOF, AND SOLID-POLYMER FUEL CELL

(54) 発明の名称: 固体高分子型燃料電池のセパレータ及びその製造方法、固体高分子型燃料電池



(57) Abstract: A separator (2, 31, 41, 51, 61) for a relatively low-cost, precision solid-polymer fuel cell (1) includes a substrate (11) and ribs (12). The ribs are formed by printing conducting material (P1) on both sides of the substrate. A fluid channel (13) is formed between adjacent ribs. Hydrogen gas and oxygen gas are passed through the fluid channels.

[続葉有]

WO 01/03214 A1



---

(57) 要約:

比較的安価で高精度な固体高分子型燃料電池（１）用のセパレータ。セパレータ（２，３１，４１，５１，６１）は基材（１１）とリブ（１２）とを備える。リブは基材の両面に導電性材料（Ｐ１）を印刷することにより形成される。隣接するリブ間に流体通路（１３）が形成される。流体通路には水素ガス及び酸素ガスが供給される。

## 明細書

固体高分子型燃料電池のセパレータ及びその製造方法、固体高分子型燃料電池

## 技術分野

本発明は、固体高分子型燃料電池、並びにそのセパレータ及びそのセパレータを製造する方法に関するものである。

## 背景技術

近年、クリーンで発電効率の高い次世代の発電装置が望まれており、酸素及び水素の持つ化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換する燃料電池に対する期待が高まっている。現状における燃料電池の種類としては、りん酸型、アルカリ型、熔融炭酸塩型、固体電解質型、固体高分子型（イオン交換膜型ともいう。）が知られている。なかでも固体高分子型燃料電池（PEFC）は、小規模かつポータブルな電源（例えば電気自動車用電源）に適すると考えられている。ゆえに、その実用化に向けて、現在精力的に開発が進められている。

このタイプの燃料電池は膜・電極積層体（単電池）を備えている。膜・電極積層体（単電池）は、例えば電解質層としてプロトン導電性を有するイオン交換膜の1つである固体高分子膜（以後プロトン交換膜）と、その膜の両面に配置された一対の電極とを有する。このような固体高分子膜は、その膜を構成する分子中に水素イオンの交換基を持つため飽和含水状態とすることができ、これによりイオン導電性電解質として機能する。また、各電極には白金等の金属触媒が担持されている。一方の電極は水素極（陰極）と呼ばれ、他方は酸素極（陽極）と呼ばれる。膜・電極積層体の両面には一対のセパレータが配置されている。両電極及びイオン交換膜の外縁部は一対のセパレータの間に支持される。セパレータ用材料としては、従来、炭素粉末及び熱硬化性樹脂を主成分とする成形体が提案されている。

水素ガス ( $H_2$ ) は水素極側のセパレータを介して水素極に供給される。水素極における触媒反応により、水素ガスは水素イオン ( $H^+$ ) と電子 ( $e^-$ ) とに解離する。水素イオンはプロトン交換膜を通過して酸素極に向かって移動し、電子は外部回路を通過して酸素極側へ移動する。

酸素極には酸素ガス ( $O_2$ ) が供給される。従って、酸素極において、触媒反応により、酸素ガスは水素イオン及び外部回路を経由した電子と反応し、水 ( $H_2O$ ) が生じる。このとき、外部回路を経由する電子は電流を形成し、負荷に対して電力を供給することができる。別の言い方をすると、酸素ガス及び水素ガスを燃料として、電気分解反応の逆反応により、起電力が得られる。

ところで、従来のセパレータは気体不透過性炭素（例えばガラス状炭素や樹脂含浸炭素材）製であり、凸部としての多数のリブを片面または両面に備えている。各リブはその上面が電極に接触するように配置される。酸素ガス、水素ガス、水分等の流体はリブ間に形成される領域を流通する。

従来においてこのようなリブは、金型を用いた公知のプレス成形法等によりセパレータと同時に形成されたり、気体不透過性炭素材を機械加工することにより形成されるのが一般的であった。しかしながら、高精度かつファインなリブを得るためには、高価な金型が必要であり、長時間の機械加工が必要である。ゆえに、これらがセパレータの生産性低下の原因となっていた。

#### 発明の開示

本発明の目的は、比較的安価でかつ高精度なセパレータ及び固体高分子型燃料電池を提供することにある。本発明の別の目的は、上記のセパレータの製造方法を提供することにある。

上記の目的を達成するために、本発明の第1の態様は、基材と、その基材の少なくとも片面に所定間隔をおいて配置された複数の導電性の凸部とを備える固体高分子型燃料電池のセパレータを提供する。隣接する凸部間には流体通路が形成される。

基材は導電性を有し、各凸部は導電性材料を用いて前記基材に印刷されたリブであることが好ましい。

基材は第1及び第2の表面を有する絶縁基材であり、複数の凸部は導電性材料を用いて前記第1及び第2の表面にそれぞれ印刷された第1の複数のリブと第2の複数のリブであり、基材は前記第1の表面上の各第1のリブと前記第2の表面上の各第2のリブとを電氣的に接続する複数の導通部を備えることが好ましい。

導通部は前記第1及び第2の面に形成された開口部を有し、前記開口部は前記リブに覆われていることが好ましい。

基材は、第1絶縁基材と、第2絶縁基材と、前記第1及び第2絶縁基材の間に配置された導電層とからなる積層体であることが好ましい。第1絶縁基材はその表面に導電性材料の印刷により形成された第1の複数のリブと前記第1の複数のリブに電氣的に接続された第1の複数の導通部とを備えることが好ましい。第2絶縁基材はその表面に導電性材料の印刷により形成された第2の複数のリブと前記第2の複数のリブに電氣的に接続された第2の複数の導通部とを備えることが好ましい。

導電層は、第1の複数の導通部と第2の複数の導通部とを電氣的に接続することが好ましい。

各導通部は導電性材料で充填されており、各導通部はテクスチャの形成された内壁面を有することが好ましい。

各導通部は導電性材料で充填されためっきスルーホールであり、めっきスルーホールはテクスチャの形成された内壁面を有することが好ましい。

各導通部は絶縁樹脂材料で充填されためっきスルーホールであり、そのめっきスルーホールはテクスチャの形成された内壁面を有することが好ましい。

導電性材料は高純度であり、前記導電性材料中の不純物濃度は比較的低いことが好ましい。

導電性材料はカーボンペーストを含むことが好ましい。

基材は炭素粉末を含むシート成形体であることが好ましい。

絶縁基材はプリント配線板用基材であることが好ましい。

本発明の第2の態様は、プロトン交換膜と、プロトン交換膜の両面に配置された一対の電極と、前記両電極上にそれぞれ配置された前記セパレータとを備える固体高分子型燃料電池を提供する。

本発明の第3の態様は、固体高分子型燃料電池のセパレータの製造方法を提供する。その方法は炭素を主成分とする成形体を成形する工程と、成形体の表面に導電性材料を印刷することにより所定形状の複数の凸部を形成する工程とを含む。

#### 図面の簡単な説明

図1は本発明の第1実施形態の固体高分子型燃料電池の分解斜視図。

図2は図1の燃料電池の概略断面図。

図3は図1の燃料電池の製造手順を示す概略図。

図4(a)～図4(d)は、図1の燃料電池の製造方法を示す概略断面図。

図5は放電中の燃料電池の概略図。

図6は本発明の第2実施形態の固体高分子型燃料電池のセパレータの一部分解斜視図。

図7は図6の燃料電池の概略断面図。

図8(a)～図8(e)は、図6の燃料電池の製造方法を示す概略断面図。

図9は本発明の第3実施形態の固体高分子型燃料電池のセパレータの一部分解斜視図。

図10は図9の燃料電池の概略断面図。

図11(a)～図11(d)は、本発明の第4実施形態のセパレータの製造方法を示す概略断面図。

図12(a)は本発明の第5実施形態のセパレータの概略断面図。

図12(b)はめっきスルーホールの内壁面の部分拡大断面図。

図13は本発明の第6実施形態のセパレータの概略断面図。



発明を実施するための最良の形態

[第1実施形態]

以下、本発明の第1実施形態の固体高分子型燃料電池1を図1～図5を参照して詳細に説明する。

図1、図2に示すように、燃料電池1は膜・電極積層体L1とセパレータ2とを備えている。膜・電極積層体L1は、プロトン交換膜3と、そのプロトン交換膜3の両面に貼りつけられた一対の電極（水素極4A、酸素極4B）とを有する。プロトン交換膜3は水素イオンの通過を許容する。プロトン交換膜3の素材は好ましくはパーフルオロカーボンスルホン酸である。水素極4A及び酸素極4Bは、炭素繊維等を主成分とする好通気性のマット状物であり、矩形状に成形されるのが好ましい。このマット状物には、白金及びパラジウムが触媒として担持されている。マット状物には撥水作用のあるフッ素樹脂等が添加されていてもよい。肉厚のフランジ部3aはプロトン交換膜3の外縁に設けられている。

膜・電極積層体L1の両側には、一対のセパレータ2が配置されている。セパレータ2は水素極4A及び酸素極4Bよりも一回り大きい矩形板状に形成されている。フランジ部3aはシール部材としてのゴムパッキング5を介して両セパレータ2の外縁部によって挟持されている。これにより、膜・電極積層体L1はセパレータ2間で位置ずれ不能である。ゴムパッキング5はフランジ部3aとセパレータ2との間から外部への流体漏れを防止する。

セパレータ2は、流体不透過性の導電基材11と、その導電基材11の両面に形成された凸部としての複数のリブ12とを備えている。尚、本明細書において流体不透過性という用語はHeガスの透過率が $1 \times 10^{-4} \sim 1 \times 10^{-12} \text{cc/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である素材の性質を表す。

導電基材11の形成には、炭素粉末及び熱硬化性樹脂を主成分とする板状成形体15が用いられている（図3参照）。このような板状成形体15は、例えば公知の押出成形法、シート成形法、ロール成形法、ドクターブレード法等により得られる。

板状成形体 15 における炭素粉末の役割は、電気比抵抗を低減してセパレータ 2 の導電性を向上させることである。使用可能な炭素粉末としては、天然黒鉛粉末、人造黒鉛粉末、ガラス状カーボン、メソカーボン、カーボンブラック等がある。これらの混合物も使用できる。この場合、極力、不純物含有量の少ない高純度炭素粉末を用いることが望ましい。具体的には、不純物濃度が 200 ppm ~ 300 ppm 程度の鱗片状炭素粉末が板状成形体 15 に添加されている。

板状成形体 15 における熱硬化性樹脂の役割は、ガス等の流体を透過させない性質をセパレータ 2（特に導電基材 11）に与えること、及び好適なシート成形性を与えることである。使用可能な熱硬化性樹脂としては、例えばエポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、フェノール樹脂などがある。これらのなかでも、フェノール樹脂が特に好ましい。フェノール樹脂は、成形性及び流体不透過性に優れ、耐酸性、耐熱性、コスト性にも優れるからである。なお、フェノール樹脂には、ノボラック系のものやレゾール系のもの等がある。ノボラック系フェノール樹脂及びレゾール系フェノール樹脂の混合物も使用できる。

複数のリブ 12 は等断面形状を有し、導電基材 11 の外縁部を除く表面領域において互いに平行に形成されている。膜・電極積層体 L1 を 2 つのセパレータ 2 間に配置した時、各リブ 12 の上端面はプロトン交換膜 3 に当接し、その結果、溝状の領域（流体通路）13 が隣接するリブ 12 の間に形成される。酸素ガス、水素ガス、水等の流体は流体通路 13 に沿って移動する。

リブ 12 の高さは 1  $\mu\text{m}$  ~ 500  $\mu\text{m}$  程度に設定されている。より好ましい高さは 100  $\mu\text{m}$  ~ 300  $\mu\text{m}$  程度である。リブ 12 が高すぎると、セパレータ 2 全体の厚さが増し、燃料電池スタックを構成したときに大型化するおそれがある。リブ 12 が低すぎると、流体通路 13 の断面積が小さくなり、流体の流通がスムーズでなくなるおそれがある。

リブ 12 の幅は 1  $\mu\text{m}$  ~ 1000  $\mu\text{m}$  程度に設定されている。より好ましい幅は 100  $\mu\text{m}$  ~ 700  $\mu\text{m}$  程度である。リブ 12 の幅が大きすぎると、流体通路 13 が幅狭となって流体通路 13 の断面積が小さくなるおそれがある。リブ 12

の幅が小さすぎると、印刷法を用いても精度よく形成することが困難となり、また、リブ 1 2 の構造が弱くなるためその高さが保持されにくくなる。

リブ 1 2 は、導電基材 1 1 の両面に対し、導電性ペーストのような導電性材料を付着させることにより形成される。具体的にいうと第 1 実施形態のリブ 1 2 は、導電性粒子である炭素粉末を主成分として含むカーボンペースト P 1 の印刷により形成されている。カーボンペースト P 1 を選択した第 1 の理由は、カーบอนは、金属のように陽イオン溶出によりプロトン交換膜 3 を被毒化する危険性がないからである。また、第 2 の理由は、カーボンからなるリブ 1 2 であれば、炭素粉末を主成分として含む導電基材 1 1 との熱膨張係数差がほぼ等しくなり、リブ 1 2 と導電基材 1 1 との接合強度も高くなるからである。なお、被毒化を確実に防止するためには、極力、不純物濃度の低い（具体的には不純物濃度が数百 p p m 以下の）カーボンペースト P 1 を用いることがよい。

次に、第 1 実施形態のセパレータ 2 の製造工程を図 3、図 4 を参照して説明する。

まず、炭素粉末及び熱硬化性樹脂を所定割合で配合し、混合物を得る。この混合物をメタノール等の溶剤の添加により適度な粘度に調整し、混練機を用いてよく混練する。これにより、フレーク状混合物が得られる。メタノールの代わりに、例えばアセトンや、高粘度の高級アルコール類等を用いてもよい。フレーク状混合物をミキサ等により粉砕し、シート成形用原料とする。

次に、押出シート成形機 1 4 による成形により、得られた原料から厚さ 1 mm ～ 1 0 mm 程度の板状成形体 1 5 を連続的に成形する。成形された板状成形体 1 5 は次の工程に連続して搬送される。押出成形後、板状成形体 1 5 を加圧機 1 6 を用いて連続的に圧縮する。

プレス後さらにキュアすべくある程度締まった板状成形体 1 5 を所定温度で所定時間にわたって加熱する。具体的には、板状成形体 1 5 は公知のキュア装置 1 7 を用いて 1 5 0 °C ～ 2 5 0 °C で 5 分 ～ 3 0 分にわたって加熱される。その結果

、板状成形体 15 はこれまで備えていた柔軟性を失い、硬化する。

キュア工程後、下記のような手順で印刷工程を実施する。印刷工程に先立ち、カーボンペースト P 1 を調製しておく。本実施形態ではカーボンペースト P 1 (藤倉化成株式会社製、商品名「ドータイト」) を用い、印刷前にその粘度を 2000 cps に調節した。ペースト P 1 中のカーボンの量は約 65 重量%である。なお、カーボンペースト P 1 には、分散剤、レベリング剤等が添加されている。

印刷機 18 には、図 4 (a) の板状成形体 15 が搬送されてくる。図 4 (b) に示すように、板状成形体 15 上に所定のメタルマスク 19 を密着させる。メタルマスク 19 には複数の細長い開口部 19 a が形成されている。この状態でメタルマスク 19 上にカーボンペースト P 1 を載せ、図 4 (c) に示すようにローラスキージ 20 を所定方向に移動させる。すると、メタルマスク 19 の開口部 19 a にカーボンペースト P 1 が刷り込まれる。そして、所定高さで所定幅のリブ 12 が板状成形体 15 上に印刷される。印刷工程は片面ずつ行ってもよく、両面に同時に行ってもよい。印刷完了後、メタルマスク 19 を導電基材 11 から剥離する (図 4 (d))。なお、メタルマスク 19 を用いる代わりに、スクリーン印刷機を用いたスクリーン印刷方法でリブ 12 を印刷してもよい。

印刷工程後、板状成形体 15 は切断機 21 に搬送され、所定の長さに切断される。この場合、打抜きプレスによって板状成形体 15 を所定形状に打ち抜いてもよい。上記一連の工程によって、所望のセパレータ 2 が完成する。

このようにして製作されたセパレータ 2 を膜・電極積層体 L 1 及びゴムパッキング 5 とともに組み立てることにより、燃料電池 1 が完成する。十分大きな起電力を得るためには、約十枚から約数百枚の燃料電池 1 を積層して、燃料電池スタックを構成してもよい。

次に、図 5 を参照して燃料電池 1 の発電メカニズムを説明する。

燃料電池 1 の使用時には、モータ等のような負荷すなわち外部回路が水素極 4 A と酸素極 4 B との間に電氣的に接続される。この状態で、水素極 4 A 側のセパ

レータ 2 から水分とともに水素ガスを連続的に供給する。この水分及び水素ガスは、水素極 4 A 側の流体通路 1 3 に沿って一定方向に流れる。同様に、酸素極 4 B 側のセパレータ 2 から水分とともに酸素ガスを連続的に供給する。この水分及び酸素ガスは酸素極 4 B 側の流体通路 1 3 に沿って一定方向に流れる。

水素極 4 A 側に供給された水素ガスは、水素極 4 A における触媒反応により水素イオンを生成する。生成された水素イオンは、プロトン交換膜 3 を通過しながら酸素極 4 B に向かって移動する。酸素極 4 B に到達した水素イオンは、酸素極 4 B における触媒反応によって酸素ガスと反応し、水を生成する。この反応過程では、電子が外部回路を通過して水素極 4 A から酸素極 4 B へ移動する。すなわち、電流は酸素極 4 B から水素極 4 A へ流れ、起電力が得られる。その結果、外部回路に直流電流が通電され、モータ等の負荷が駆動される。

第 1 実施形態によれば以下の効果が得られる。

(1) 流体は導電基材 1 1 を透過しないので、流体は流体通路 1 3 に沿って無駄なく確実に流される。従って、セパレータ 2 を用いた燃料電池 1 によれば、安定した起電力が得られる。また、リブ 1 2 の形成工程には、高価なプレス成形用金型や長時間の機械加工は不要なので、セパレータ 2 は比較的安価に製造され、燃料電池 1 の製造コストは低下する。

(2) 基材 1 1 は導電性を有するので、その両面に形成されたリブ 1 2 は互いに電氣的に接続される。そのため、セパレータ 2 を積層することによって、燃料電池スタックを比較的容易に構成することができる。

また、導電性材料であるカーボンペースト P 1 の印刷により形成されたリブ 1 2 は、高価なプレス成形用金型や長時間の機械加工によって形成されたリブに比べ、高精度かつファインである。

(3) 第 1 実施形態の製造方法によれば、高価なプレス成形用金型や長時間の機械加工を必要とせずに、高精度でファインなリブ 1 2 を備えるセパレータ 2 を安価で、確実にかつ効率よく製造することができる。

以下の各実施形態については、第1実施形態と共通または類似の部材を同一の参照番号で示し、相違する点を中心に説明する。

[第2実施形態]

本発明の第2実施形態の燃料電池1におけるセパレータ31を図6～図8を参照して説明する。

図6、図7に示すように、セパレータ31の基材には、絶縁基材35が使用されている。好適な絶縁基材35としては、例えばガラスエポキシ基材、ポリイミド基材、ポリエステル基材、フッ素系樹脂基材等といった一般的なプリント配線板用基材を挙げることができる。この種の絶縁基材35は、加工性や絶縁特性などに優れるという利点を有する。

絶縁基材35の両面には、凸部としての複数のリブ12が印刷されている。リブ12は導電性を有し、その材料には、金、銀、白金、パラジウム等から選択される少なくとも1種の貴金属を含む貴金属ペーストP2が用いられている。貴金属ペーストP2を選択した理由は、貴金属はイオン化傾向が小さいため、当該貴金属がプロトン交換膜3に接触したとしても、プロトン交換膜3はほとんど被毒化されないからである。

また、絶縁基材35には、導通部としてのめっきスルーホール32が設けられている。めっきスルーホール32はリブ12の底面に対応する絶縁基材35に開口し、めっきスルーホール32の開口部の周囲にランドが形成されている。従って、絶縁基材35の両面のリブ12は互いに電氣的に接続されている。めっきスルーホール32の開口直径はリブ12の幅よりも若干小さく設定されている。従って、リブ12がめっきスルーホール32の開口部を覆うので、流体通路13内を流れる流体がめっきスルーホール32に接触あるいは進入することは防止される。めっきスルーホール32内に導電性材料を充填することが好ましい。ここで導電性材料は、貴金属ペーストP2であってもよく、それ以外の物質であってもよい。

次に、第2実施形態のセパレータ31を製造する手順を図8を参照して説明する。

まず、図8(a)に示すように、出発材料である絶縁基材35を用意する。絶縁基材35は、すでに所定長さに分断されたものでもよく、ロール状に巻かれたものでもよい。ロール状のものを選択した場合には、後に所定長さに分断する工程が必要となる。

次に、図8(b)に示すように、絶縁基材35の所定箇所に孔33を形成する。絶縁基材35に図示しないマスクを設け、触媒核付与し、その触媒核を活性化し、さらに無電解銅めっきを行う。その結果、図8(c)に示すように、孔33の内壁と開口部の周囲(ランド)とがめっきされ、めっきスルーホール32が形成される。

次に、印刷工程を実施する。印刷工程の実施に先立ち、貴金属ペーストP2を調製しておく。第2実施形態では銀ペースト(藤倉化成株式会社製、商品名「ドータイト」)を用い、印刷前にその粘度を2000cpsに調節した。前記銀ペーストには、分散剤、消泡剤等が添加されている。図8(d)に示すように、印刷機に搬送されてきた絶縁基材35上にメタルマスク19を密着させる。メタルマスク19上に貴金属ペーストP2を載せ、ローラスキージ20を所定方向に移動させる。これにより、貴金属ペーストP2はメタルマスク19の開口部19aに刷り込まれ、所定高さで所定幅のリブ12が印刷される。印刷完了後、メタルマスク19を絶縁基材35から剥離する(図8(e)参照)。なお、メタルマスク19を用いずに、スクリーン印刷機によるスクリーン印刷を行ってもよい。

上記の一連の工程によって、所望のセパレータ31が完成する。セパレータ31を、膜・電極積層体L1及びゴムパッキング5とともに組み立てれば、図7に示す燃料電池1が完成する。

第2実施形態によれば、以下の効果が得られる。

(1) 貴金属ペーストP2の印刷によりリブ12を形成することにより、セパ

レータ 31 の形成に際して高価なプレス成形用金型や長時間の機械加工が不要となる。よって、セパレータ 31 は比較的安価に製造され、ひいては燃料電池 1 の製造コストは低減される。

(2) 導電性を有しない絶縁基材 35 に導電性を有するめっきスルーホール 32 が設けられているので、絶縁基材 35 の両面に印刷されたリブ 12 同士は、同めっきスルーホール 32 により電氣的に接続される。従って、隣接するセパレータ 31 間に導通が図られるので、燃料電池スタックを比較的容易に構成することができる。

また、貴金属ペースト P2 の印刷により形成されたリブ 12 は、プレス成形用金型や長時間の機械加工によって形成されたリブに比べ、高精度かつファインなものとなるという利点がある。

(3) めっきスルーホール 32 の開口部はリブ 12 によって覆われている。従って、流体通路 13 を流れる流体はめっきスルーホール 32 の形成箇所に接触しない。ゆえに、めっきスルーホール 32 の銅めっき層の銅がイオン化して流体中に混入するおそれがなく、プロトン交換膜 3 の被毒化が確実に防止される。その結果、長期にわたって安定した起電力を得ることができる。

### [第 3 実施形態]

次に、本発明の第 3 実施形態のセパレータ 41 を図 9、図 10 を参照して説明する。

単層構造を採用していた第 1、第 2 実施形態のものとは異なり、第 3 実施形態のセパレータ 41 は積層構造を採用している。セパレータ 41 は、第 1 絶縁基材 35A と、第 2 絶縁基材 35B と、両絶縁基材 35A、35B の間に配置された層状の導電体 42 とからなる積層体である。絶縁基材 35A、35B としては、第 2 実施形態にて示した一般的なプリント配線板用基材が使用される。層状の導電体 42 としては、例えば、銅めっき層、アルミニウムめっき層、金めっき層などに代表される導電性金属のめっき層が使用される。また、導電体 42 として、



導電性金属のスパッタ層、導電性金属ペーストの印刷層、導電性金属からなる箔などを採用してもよい。

導電体42の厚さは $1\mu\text{m}$ ～ $1000\mu\text{m}$ 程度に設定されるのが好ましく、特に $10\mu\text{m}$ ～ $100\mu\text{m}$ 程度であることが好ましい。導電体42が薄すぎると、電気抵抗が大きくなり、発熱を引き起こす原因となる。逆に、導電体42が厚すぎると、電気抵抗の増大という問題は生じないが、セパレータ41全体の厚さが増してしまう。従って、燃料電池スタックを構成したときに、大型化したり重量が増加してしまうおそれがある。

図9に示すように、導電体42は両絶縁基材35A、35Bの外形寸法よりもひとまわり小さく形成されていることがよい。別のいい方をすると、その導電体42が絶縁基材35A、35B間に配置された時に、導電体42は両絶縁基材35A、35Bの外縁部のみが残るように形成されていることがよい。このように形成することにより、積層時に導電体42が積層体の表面に露出しないので、導電体42の被毒化は確実に防止される。

第1絶縁基材35Aの片面に、貴金属ペーストP2の印刷によって複数の第1リブ12Aが形成されている。第1絶縁基材35Aにはめっきスルーホール32Aが設けられている。めっきスルーホール32Aは第1絶縁基材35Aの第1リブ12Aに対応する位置に開口し、めっきスルーホール32Aの開口部周囲のめっき部分は第1リブ12Aに電氣的に接続している。同様に、第2絶縁基材35Bの片面に、貴金属ペーストP2の印刷によって複数の第2リブ12Bが形成されている。第1リブ12Aと第2リブ12Bは互いに直交している。第2絶縁基材35Bにはめっきスルーホール32Bが設けられている。めっきスルーホール32Bは第2絶縁基材35Bの第2リブ12Bに対応する位置に開口し、めっきスルーホール32Bの開口部周囲のめっき部分は第2リブ12Bに電氣的に接続している。

第1絶縁基材35Aのめっきスルーホール32Aと、第2絶縁基材35Bのめっきスルーホール32Bとは、導電体42を介して互いに電氣的に接続されてい

る。即ち、めっきスルーホール 3 2 A、3 2 B 及び導電体 4 2 によって、積層体の表面のリブ 1 2 A と裏面のリブ 1 2 B とは電氣的に接続されている（層間接続）。

第 3 実施形態によれば、以下の効果が得られる。

（１）第 3 実施形態のセパレータ 4 1 によれば、第 2 実施形態と同様の作用効果が得られる。

（２）導電体 4 2 がめっきスルーホール 3 2 A、3 2 B を電氣的に接続するので、めっきスルーホール 3 2 A、3 2 B の形成位置は制約を受けにくくなる。即ち、めっきスルーホール 3 2 A、3 2 B の形成自由度が大きくなる。従って、セパレータ 4 1 の設計は容易になるという利点がある。

#### 〔第 4 実施形態〕

次に、本発明の第 4 実施形態のセパレータ 5 1 について説明する。

セパレータ 5 1 は図 1 1 (a) ～ 1 1 (d) に示す手順で製造される。まず、絶縁基材 3 5 を用意し、絶縁基材 3 5 の所定箇所に導通部 5 2 を形成する。導通部 5 2 は孔状（即ち貫通孔）であっても溝状（即ち貫通溝）であってもよい。絶縁基材 3 5 を印刷機にセットし、絶縁基材 3 5 にメタルマスク 1 9 を密着させてローラスキージ 2 0 にて導電性材料である貴金属ペースト P 2 を印刷し、リブ 1 2 を形成する。このとき、貴金属ペースト P 2 が導通部 5 2 内に充填されるように、貴金属ペースト P 2 の粘度等は適宜設定されている。この方法で製造されたセパレータ 5 1 では、導通部 5 2 内に充填された貴金属ペースト P 2 により絶縁基材 3 5 の表面と裏面のリブ 1 2 は電氣的に接続される。尚、貴金属ペースト P 2 の代わりに第 1 実施形態のカーボンペースト P 1 を用いることもできる。

第 4 実施形態によれば、以下の効果を奏する。

導通部 5 2 にめっきを形成する工程は不要である。従って、製造工程が低減される。

## [第5実施形態]

図12を参照して、本発明の第5実施形態のセパレータ61について第2実施形態と相違する点を中心に説明する。

セパレータ61には導通部としてめっきスルーホール32が形成されている。めっきスルーホール32の内壁面には、めっき層としての無電解銅めっき層62が形成されている。めっき層62には微細な突起を有するテクスチャ層63が形成されている。すなわちめっき層62は粗い表面63を有している。めっきスルーホール32のランド64の表面にも、テクスチャ層63が形成されている。なお、十分なアンカー効果を得るためには、テクスチャ層63の表面粗さRaは1 $\mu$ m $\sim$ 20 $\mu$ mに設定することが好ましい。

テクスチャ層63は、無電解銅－ニッケル－リンめっき等によって得られる針状合金層である。この他、銅の酸化処理によって得られる黒化層、銅の酸化処理および還元処理によって得られる黒化還元層、ブラウン還元層などを選択してもよい。特に、針状合金層が望ましい。その理由は、針状合金層は例えば以下の好適な性質を有するからである。1) 充填された材料と良好に密着する。2) 強靱であるため硬質でクラックが生じにくい。3) ヒートサイクル特性に優れる。

針状合金層を形成するための無電解銅めっき浴の組成の一例を以下に示す。

硫酸銅： 1 $\sim$ 40 g/リットル、

硫酸ニッケル： 0.1 $\sim$ 6.0 g/リットル、

クエン酸： 10 $\sim$ 20 g/リットル、

次亜リン酸塩： 10 $\sim$ 100 g/リットル、

ほう酸： 10 $\sim$ 20 g/リットル、

界面活性剤： 0.01 $\sim$ 10 g/リットル。

無電解めっき処理の好適な条件を以下に示す。

めっき浴の温度： 60 $\sim$ 80 $^{\circ}$ C、

pH： 8.5 $\sim$ 10程度、

浴比： 0.01 $\sim$ 1.0 dm<sup>3</sup>/リットル、

析出速度： 1～3  $\mu\text{m}$  / 10分、

めっき時間： 5～20分。

テクスチャ層63の厚さ、すなわちめっきスルーホール内壁の平滑な導体表面から針状合金の頂部までの距離（突起の先端と底部との距離）は、0.5  $\mu\text{m}$ ～7.0  $\mu\text{m}$ に設定される。好ましくは1.0  $\mu\text{m}$ ～5.0  $\mu\text{m}$ であり、より好ましくは1.5  $\mu\text{m}$ ～3.0  $\mu\text{m}$ の範囲内である。テクスチャ層63が厚すぎると、めっき処理に長い時間を要するため、製造コストが嵩む。また、テクスチャ層63の突起が脆くなり、充填材料との間に隙間が生じやすくなる。一方、テクスチャ層63が薄すぎると、アンカー効果が不十分となり、充填材料との間に隙間が生じやすくなる。

テクスチャ層63は、スズ層によって保護されていることが望ましい。その理由を以下に列挙する。1) 前記合金めっきは酸や酸化剤に溶解しやすい。従って、スズ層によって合金めっきを保護しておけば合金めっきの溶解が防止され、好適に形成されたテクスチャ層63の突起が維持される。2) スズ層は、テクスチャ層63と充填材料との間における空隙の発生を防止し、密着性を向上させることができる。3) スズは工業的に安価で毒性が少ない金属である。4) スズは銅との置換反応によって析出する金属であるため、銅－ニッケル－リン層の針状合金を破壊することなく被覆することができる。

第5実施形態において、めっきスルーホール32の充填材料としては、例えば樹脂絶縁材料や導電性材料がある。

前記樹脂絶縁材料としては、マトリクス樹脂中にフィラーを含ませたものを使用することが好ましい。このようなフィラーが含まれていると、充填材料の熱膨張係数は小さくなり、ヒートサイクル特性が改善される。マトリクス樹脂としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエーテルサルホン樹脂等が挙げられる。これらのなかでもエポキシ樹脂を用いることが望ましい。フィラーとしては、エポキシ樹脂やポリイミド樹脂等の有機フィラー、シリカやアルミナ等の無機フィラー等を用いることができる。フィラーの平均粒径は0.1  $\mu\text{m}$ ～10  $\mu\text{m}$ で

あることが望ましい。平均粒径が小さすぎると、硬化時において膨張・収縮を緩和する効果が得られにくくなる。逆に、平均粒径が大きすぎると、フィラーがテクスチャ層 6 3 の突起よりも大きくなり、フィラーとテクスチャ層 6 3 との追従性（なじみやすさ）が悪くなるおそれがある。

また、前記導電性材料としては、第 2 実施形態においても述べたように、金、銀、白金、パラジウム等から選択される少なくとも 1 種の貴金属を含むリブ形成用の貴金属ペースト P 2 が好ましい。勿論、貴金属の代わりに銅等の卑金属を含むペーストを用いることもできる。銅を採用した場合、セパレータ 6 1 の両面間の電気抵抗は低減され、製造コストは低減される。なお、金属を含むペーストの代わりに第 1 実施形態のカーボンペースト P 1 を用いることもできる。

第 5 実施形態によれば、以下の効果が得られる。

(1) めっきスルーホール 3 2 に樹脂絶縁材料または導電性材料のような充填材料を充填した場合、テクスチャ層 6 3 のアンカー効果によって、無電解銅めっき層 6 2 に対する充填材料の密着性が向上する。また、めっきスルーホール 3 2 内にボイドが存在しないので、ヒートサイクル特性が向上し、めっきスルーホール 3 2 近傍にクラックが発生しにくくなる。その結果、信頼性に優れたセパレータ 6 1、ひいては信頼性に優れた燃料電池 1 が提供できる。

(2) めっきスルーホール 3 2 内に導電性材料を充填することにより、めっきスルーホール 3 2 を介したセパレータ 6 1 の電気抵抗は低減される。その結果、電気ロスが少なく、効率のよい発電を行うことが可能な優れた燃料電池 1 を提供できる。

#### [第 6 実施形態]

図 1 3 を参照して、本発明の第 6 実施形態のセパレータ 7 1 について第 4 実施形態との相違点を中心に説明する。

第 6 実施形態のセパレータ 7 1 は、導通部 5 2 の内壁面及び絶縁基材 3 5 の表

裏面に微細な突起を有するテクスチャ層 7 2 が形成されている。

テクスチャ層 7 2 は例えば以下のように形成される。まず、導通部 5 2 を形成する。絶縁基材 3 5 に下記の樹脂材料を塗布する。そして、酸化処理により樹脂材料の層を粗化する。

ここで、前記樹脂材料としては、酸あるいは酸化剤に対して可溶性でありかつあらかじめ硬化処理された耐熱性の樹脂微粒子（フィラー樹脂）と、硬化処理することにより酸あるいは酸化剤に対して難溶性になる耐熱性樹脂液（マトリクス樹脂）とを含むものが挙げられる。なお、前記マトリクス樹脂は、感光性樹脂であつてもよく熱硬化性樹脂であつてもよい。

耐熱性の樹脂微粒子としては、1) 平均粒径が  $2\ \mu\text{m}$  以下の耐熱性樹脂粉末を凝縮させて平均粒径  $2\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$  の大きさとした凝集粒子、2) 平均粒径  $2\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$  の耐熱性樹脂粉末と、平均粒径が  $2\ \mu\text{m}$  以下の耐熱性樹脂粉末との粒子混合物、3) 平均粒径  $2\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$  の耐熱性樹脂粉末の表面に平均粒径が  $2\ \mu\text{m}$  以下の耐熱性樹脂粉末または無機微粉末を付着させてなる疑似粒子、等が挙げられる。これらのなかでも、特に 2) の粒子混合物が好適である。粒子混合物を粗化することによってテクスチャ層 7 2 を形成した場合、より確実なアンカー効果を確保することができる。

前記フィラー樹脂となる耐熱性樹脂微粒子として、例えばエポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ビスマレイミド・トリアジン樹脂等の粉末が使用できる。樹脂微粒子の大きさは、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$  の範囲内であることが望ましい。前記マトリクス樹脂となる耐熱性樹脂として、エポキシ樹脂、エポキシ変成ポリイミド樹脂、ポリイミド樹脂、フェノール樹脂が使用できる。また、これらの樹脂に対して感光性を付与してもよい。これらの耐熱性樹脂の液体に対して上記の樹脂微粒子を所定量配合し、ブチルセルソルブ等の溶剤を加えて攪拌することによって、前記樹脂微粒子が均一に分散されたワニスを得られる。このワニスを絶縁基材 3 5 に対して均一に塗布する。このとき、絶縁基材 3 5 の表裏面のみならず、導通部 5 2 の内壁面もワニスによって覆われるようにする。その後、硬化処理を行

い、図示しない樹脂層を形成する。

前記酸化処理に用いられる酸化剤としては、例えばクロム酸、クロム酸塩、過マンガン酸塩、オゾンが挙げられる。このような酸化剤を用いて酸化処理を行うと、フィラー樹脂部分のみが選択的に溶解され、マトリクス樹脂表面にアンカーとしての無数の微細なテクスチャが形成される。即ち、前記樹脂層の表面が粗化され、テクスチャ層 7 2 が形成される。なお、テクスチャ層 7 2 の表面粗度 (R<sub>max</sub>) は、1 μm ~ 20 μm の範囲内に設定されることが望ましい。この範囲内であると、好適なアンカー効果が得られるからである。

第 6 実施形態によれば、以下の効果を奏する。

導通部 5 2 に貴金属ペースト P 2 を充填した場合、テクスチャ層 7 2 によるアンカー効果によって、前記導電性材料と導通部 5 2 の内壁面の樹脂層との密着性が向上する。従って、ヒートサイクル特性が向上し、導通部 5 2 にクラックが発生しにくくなる。その結果、信頼性に優れたセパレータ 7 1、ひいては信頼性に優れた燃料電池 1 が提供される。なお、導通部 5 2 の内壁面に樹脂層を形成することなく、当該導通部 5 2 の内壁面に直接にテクスチャ層 7 2 を形成してもよい。

なお、本発明の第 1 ~ 第 6 実施形態は以下のように変更してもよい。

- ・ 各実施形態において、リブ 1 2, 1 2 A, 1 2 B のレイアウトは、任意に変更することが可能である。また、細長い形状のリブ 1 2, 1 2 A, 1 2 B の代わりに例えば突起を形成してもよい。

- ・ 第 1 実施形態において、プレス工程やキュア工程は省略してもよい。

- ・ 第 1 実施形態のカーボンペースト P 1 や、第 2 実施形態等の貴金属ペースト P 2 の代わりに、ウレタン系、ゴム系、エラストマー系のインクを印刷用導電性材料として用いることもできる。

- ・ 各実施形態において、導電基材は板状成形体 1 5 に限定されることはなく、例えば熱可塑性樹脂フィルムを加熱処理等によって炭化させたもの等であって

もよい。

- ・ 各実施形態において、例えば、塗布法、めっき法、貼り付け法などの他の手法によって、凸部としてのリップ 1 2, 1 2 A, 1 2 B を形成してもよい。



## 請求の範囲

## 1. 基材と、

その基材の少なくとも片面に所定間隔をおいて配置された複数の導電性の凸部とを備え、隣接する凸部間には流体通路が形成されている固体高分子型燃料電池のセパレータ。

2. 前記基材は導電性を有し、前記各凸部は導電性材料を用いて前記基材に印刷されたリブを含む請求項 1 に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

3. 前記基材は第 1 及び第 2 の表面を有する絶縁基材を含み、前記複数の凸部は導電性材料を用いて前記第 1 及び第 2 の表面にそれぞれ印刷された第 1 の複数のリブと第 2 の複数のリブとを含み、前記基材は前記第 1 の表面上の各第 1 のリブと前記第 2 の表面上の各第 2 のリブとを電気的に接続する複数の導通部を備える請求項 1 に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

4. 前記導通部は前記第 1 及び第 2 の面に形成された開口部を有し、前記開口部は前記リブに覆われている請求項 3 に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

5. 前記基材は、第 1 絶縁基材と、第 2 絶縁基材と、前記第 1 及び第 2 絶縁基材の間に配置された導電層とからなる積層体であり、

前記第 1 絶縁基材はその表面に導電性材料の印刷により形成された第 1 の複数のリブと、前記第 1 の複数のリブに電気的に接続された第 1 の複数の導通部とを備えることと、

前記第 2 絶縁基材はその表面に導電性材料の印刷により形成された第 2 の複数のリブと、前記第 2 の複数のリブに電気的に接続された第 2 の複数の導通部とを

備えることと、

前記導電層は、前記第 1 の複数の導通部と前記第 2 の複数の導通部とを電氣的に接続することとを備える請求項 1 に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

6. 前記各導通部は導電性材料で充填されていることと、その各導通部はテクスチャの形成された内壁面を有する請求項 3 乃至 5 のいずれか 1 項に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

7. 前記各導通部は導電性材料で充填されためっきスルーホールを含み、そのめっきスルーホールはテクスチャの形成された内壁面を有する請求項 3 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

8. 前記各導通部は絶縁樹脂材料で充填されためっきスルーホールを含み、そのめっきスルーホールはテクスチャの形成された内壁面を有する請求項 3 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

9. 前記導電性材料は高純度であり、前記導電性材料中の不純物濃度は比較的低い請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 つに記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

10. 前記導電性材料はカーボンペーストを含む請求項 9 に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

11. 前記基材は炭素粉末を含むシート成形体である請求項 1, 2, 6, 9, 10 のいずれか 1 つに記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

12. 前記絶縁基材はプリント配線板用基材である請求項 3 ～ 5 のいずれか 1 つ

に記載の固体高分子型燃料電池のセパレータ。

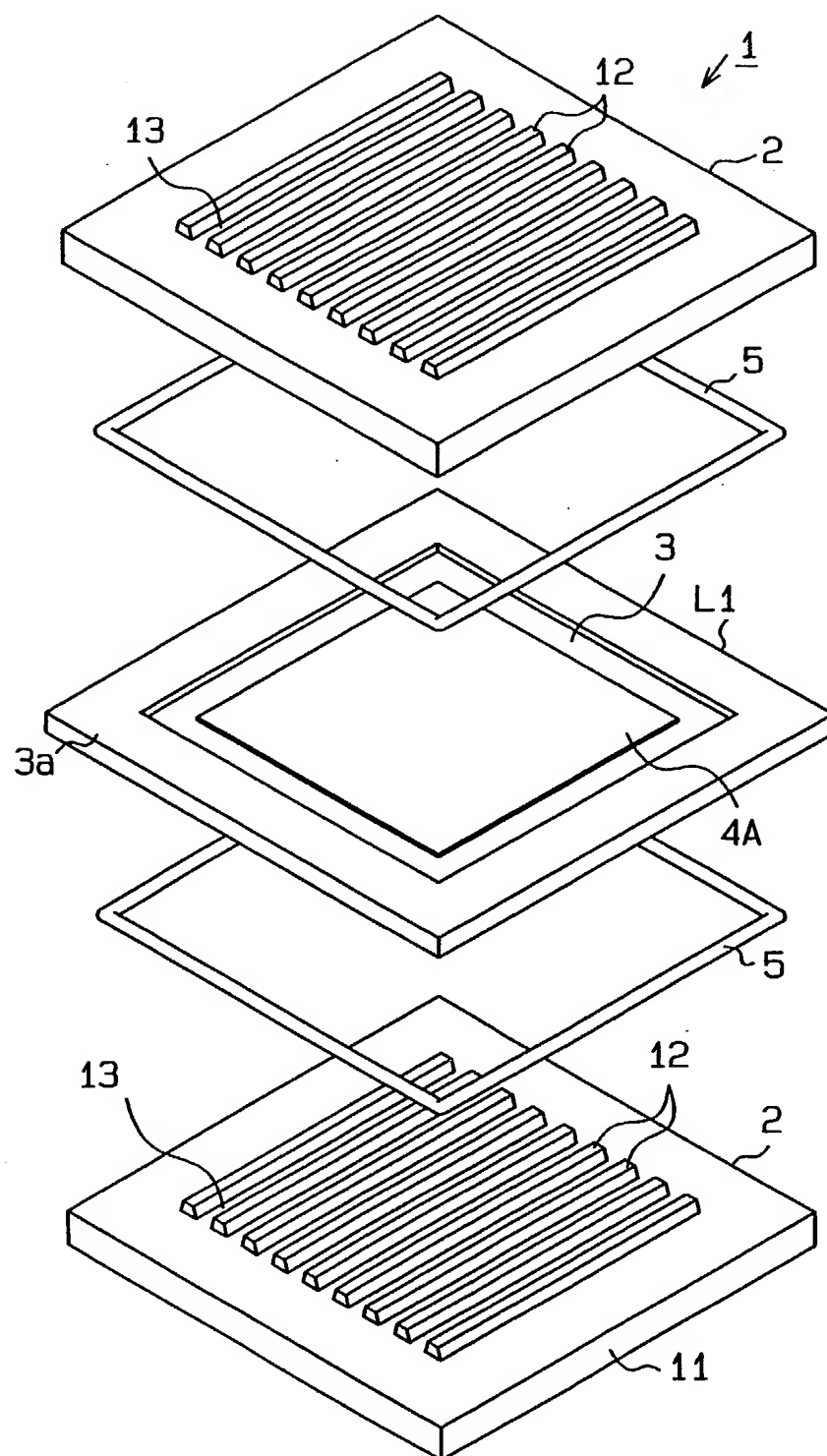
13. プロトン交換膜と、前記プロトン交換膜の両面に配置された一对の電極と、前記両電極上にそれぞれ配置された請求項1～12のいずれか1項に記載のセパレータとを備える固体高分子型燃料電池。

14. 炭素を主成分とする成形体を成形する工程と、

前記成形体の表面に導電性材料を印刷することにより所定形状の複数の凸部を形成する工程と

を含む固体高分子型燃料電池のセパレータの製造方法。

1/11

**Fig.1**

**Fig. 2**

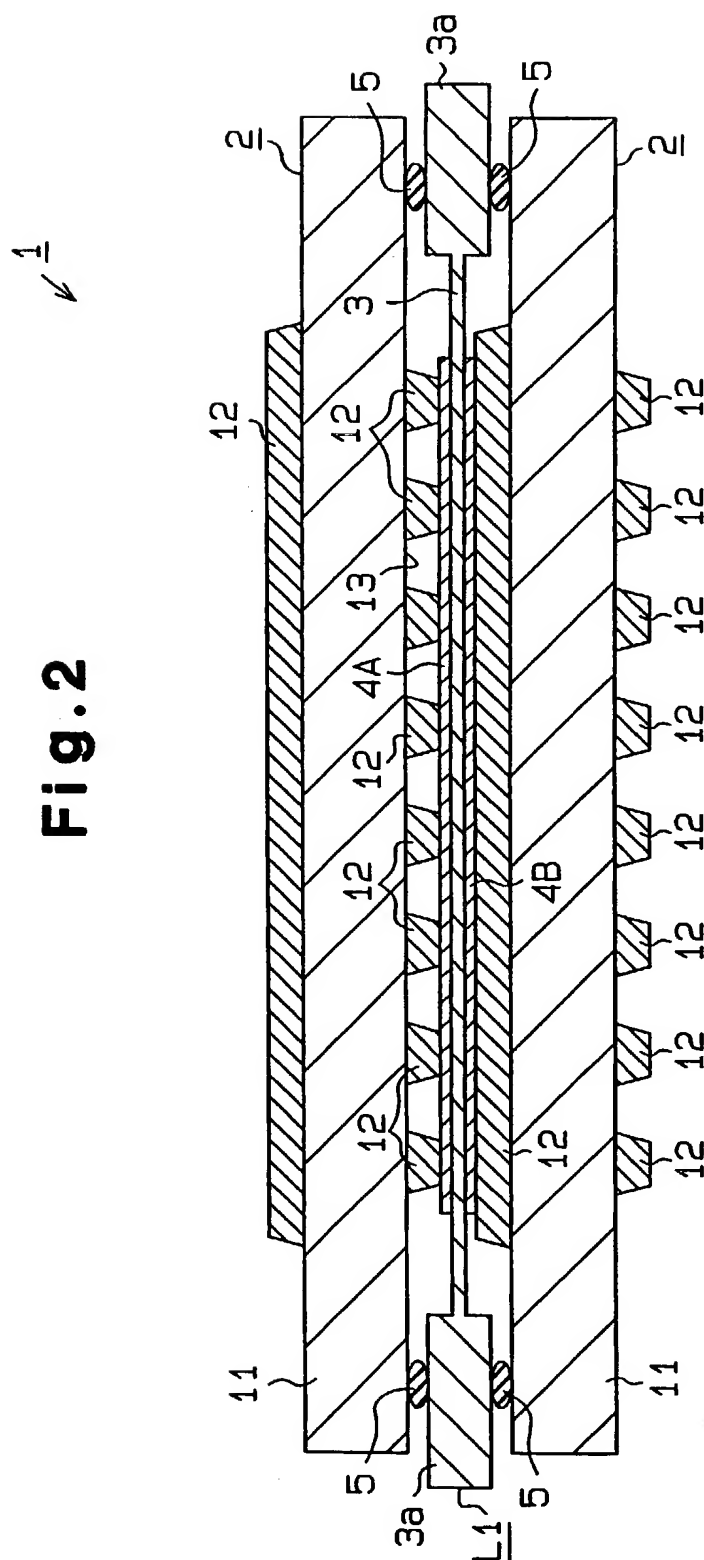
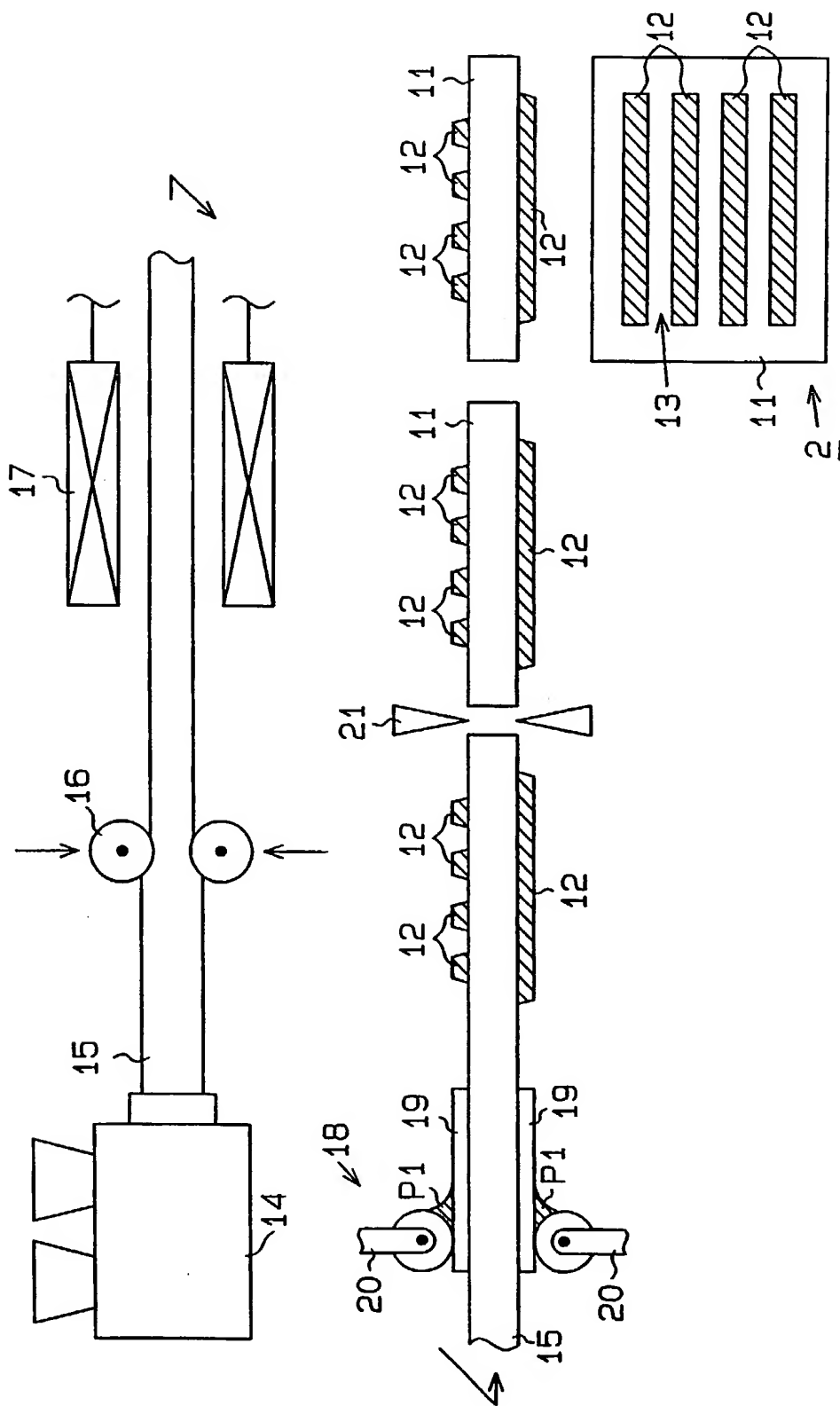
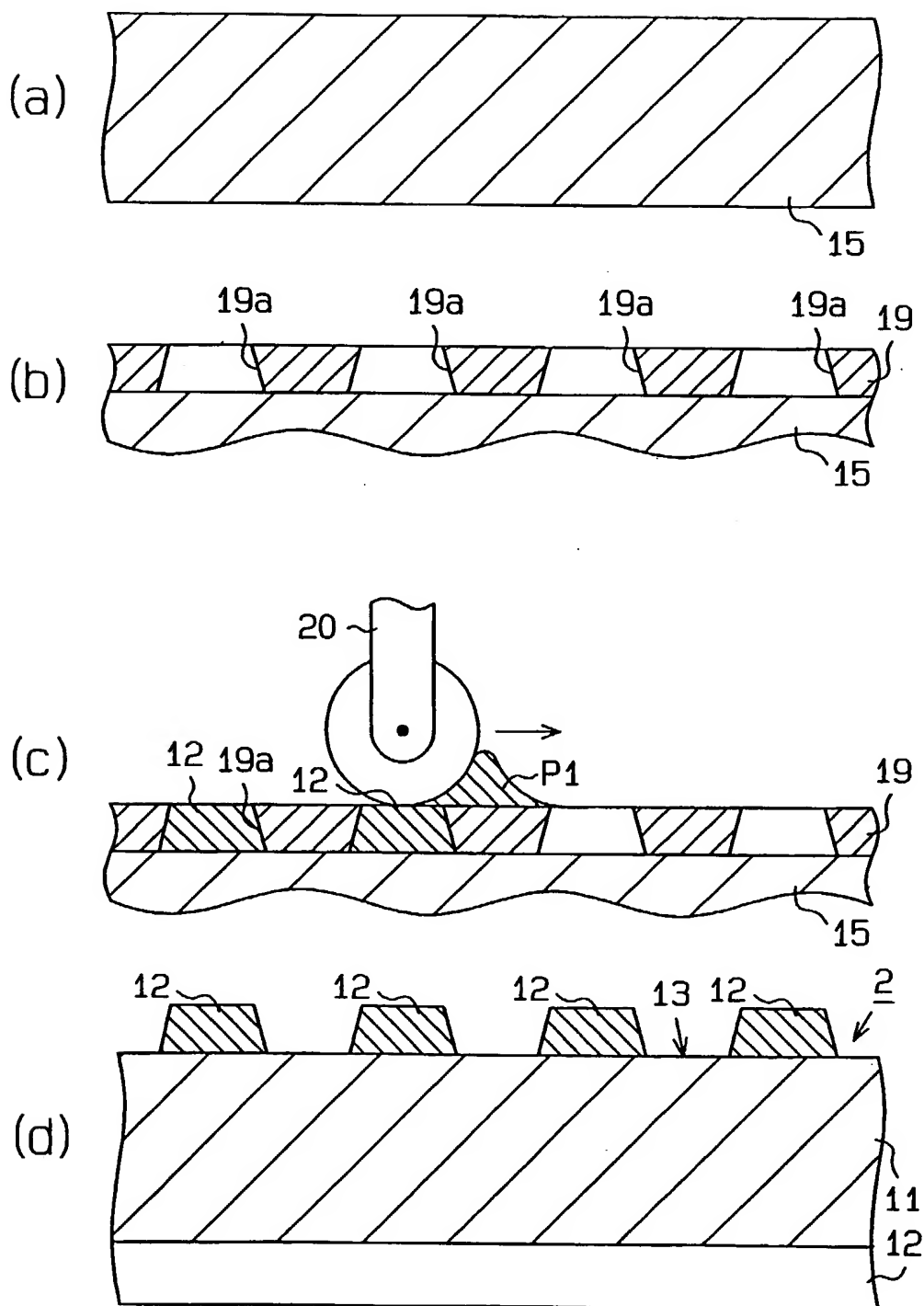


Fig. 3

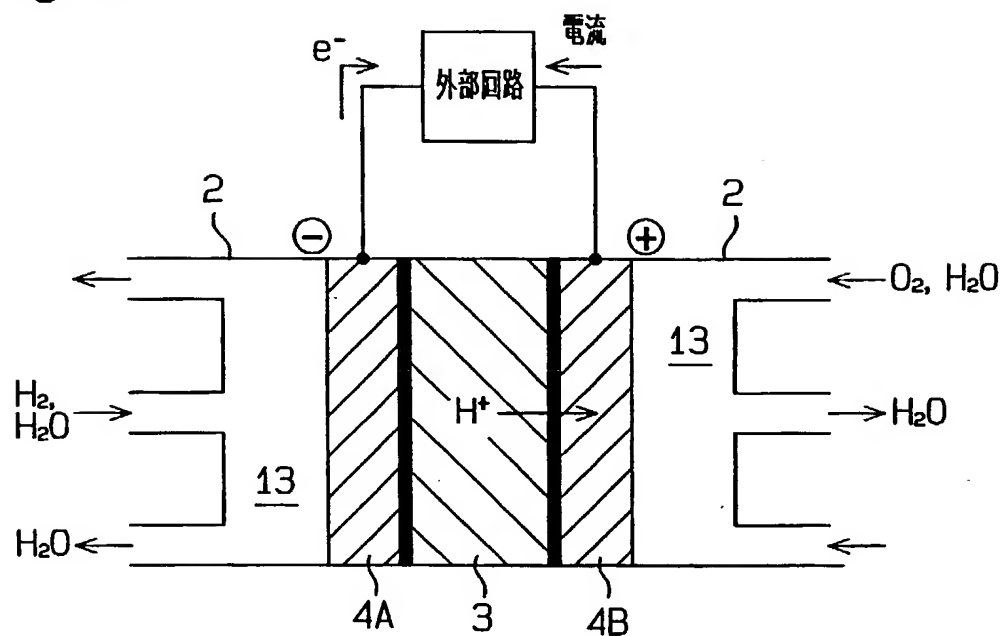
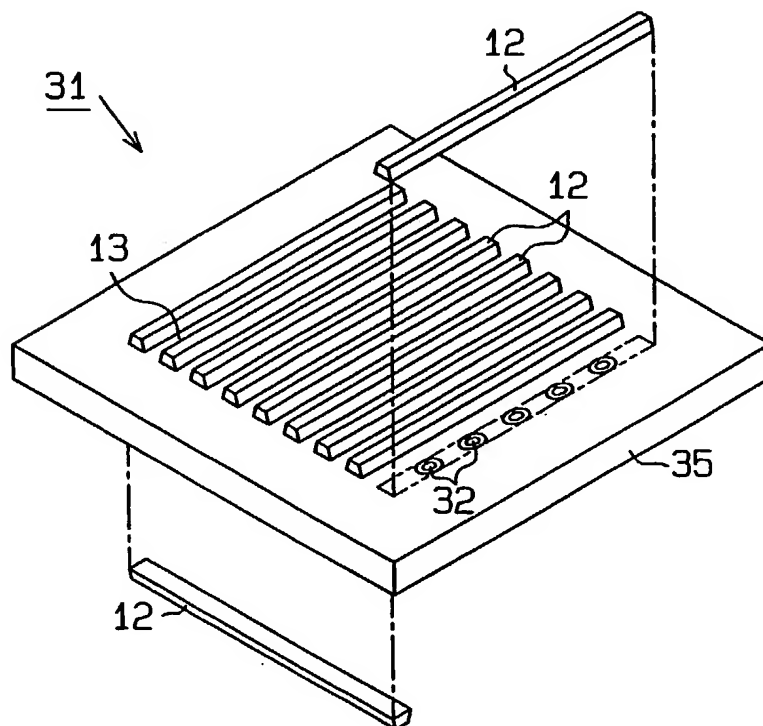


4/11

**Fig. 4**



5/11

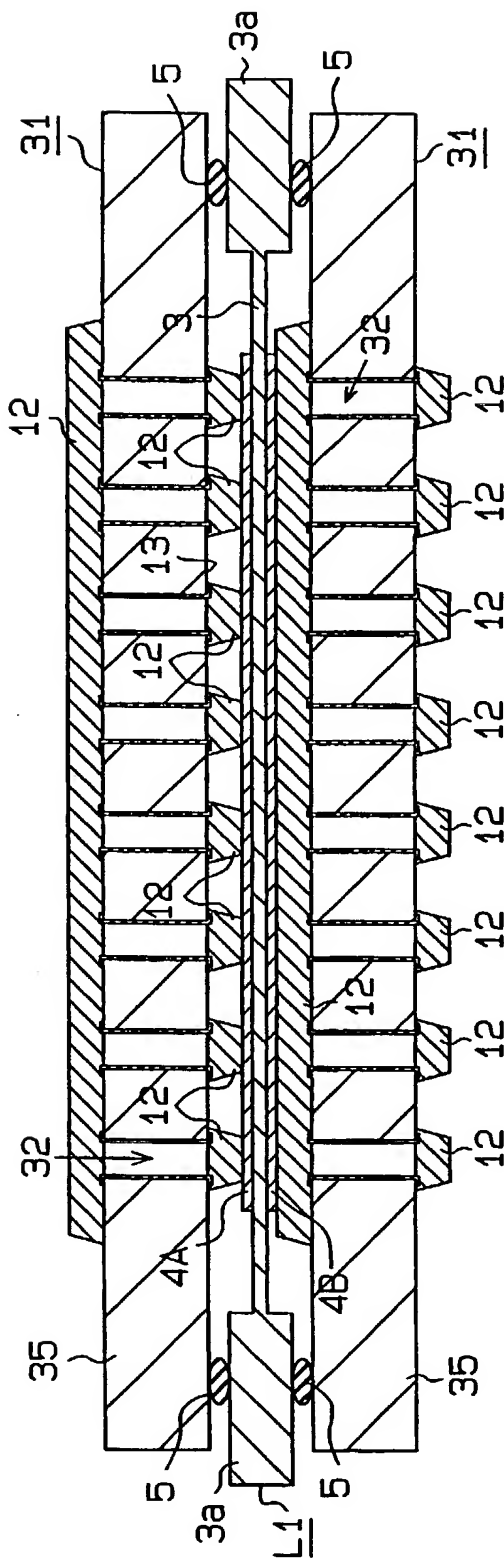
**Fig. 5****Fig. 6**



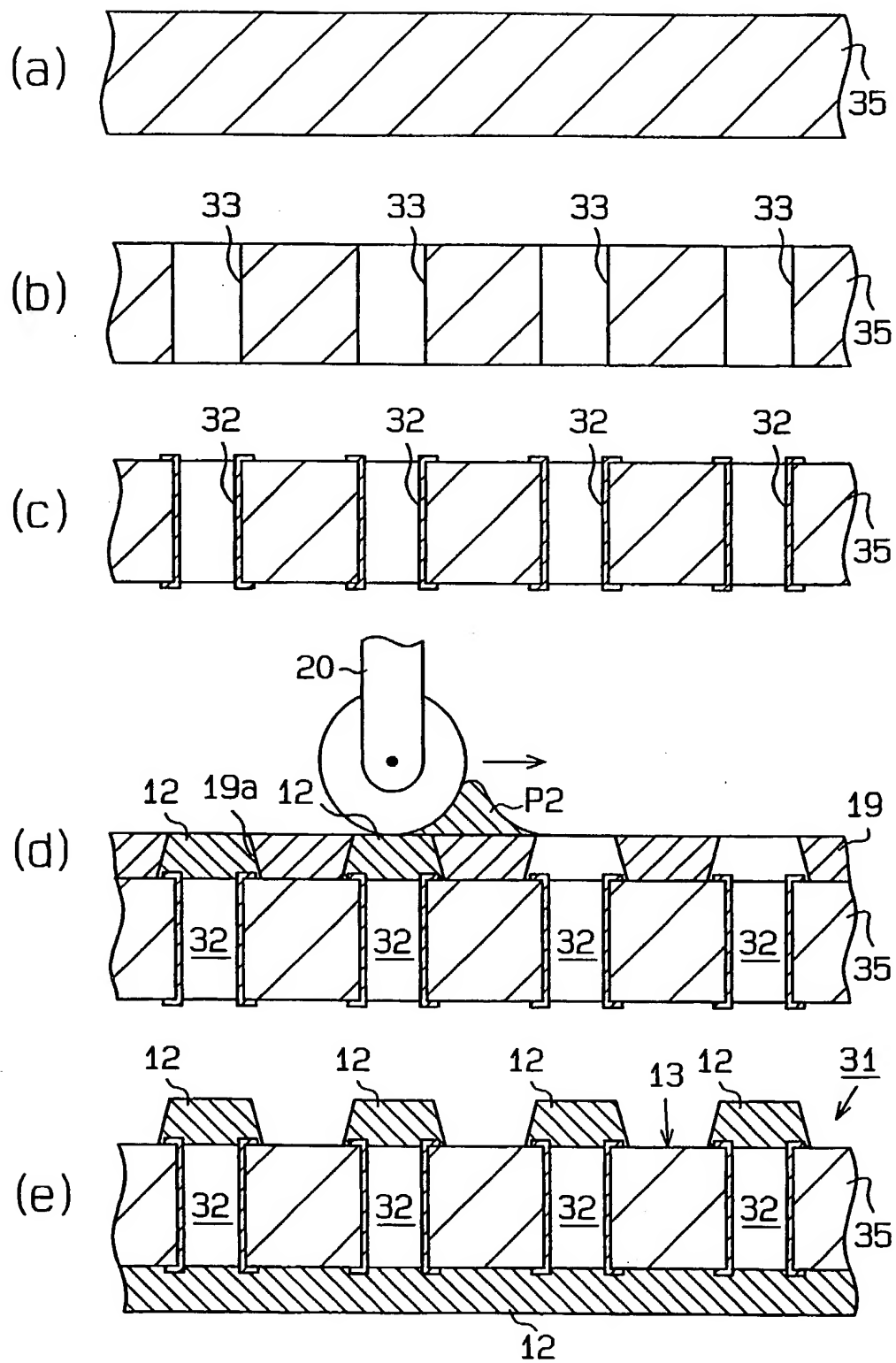
6/11

Fig. 7

1

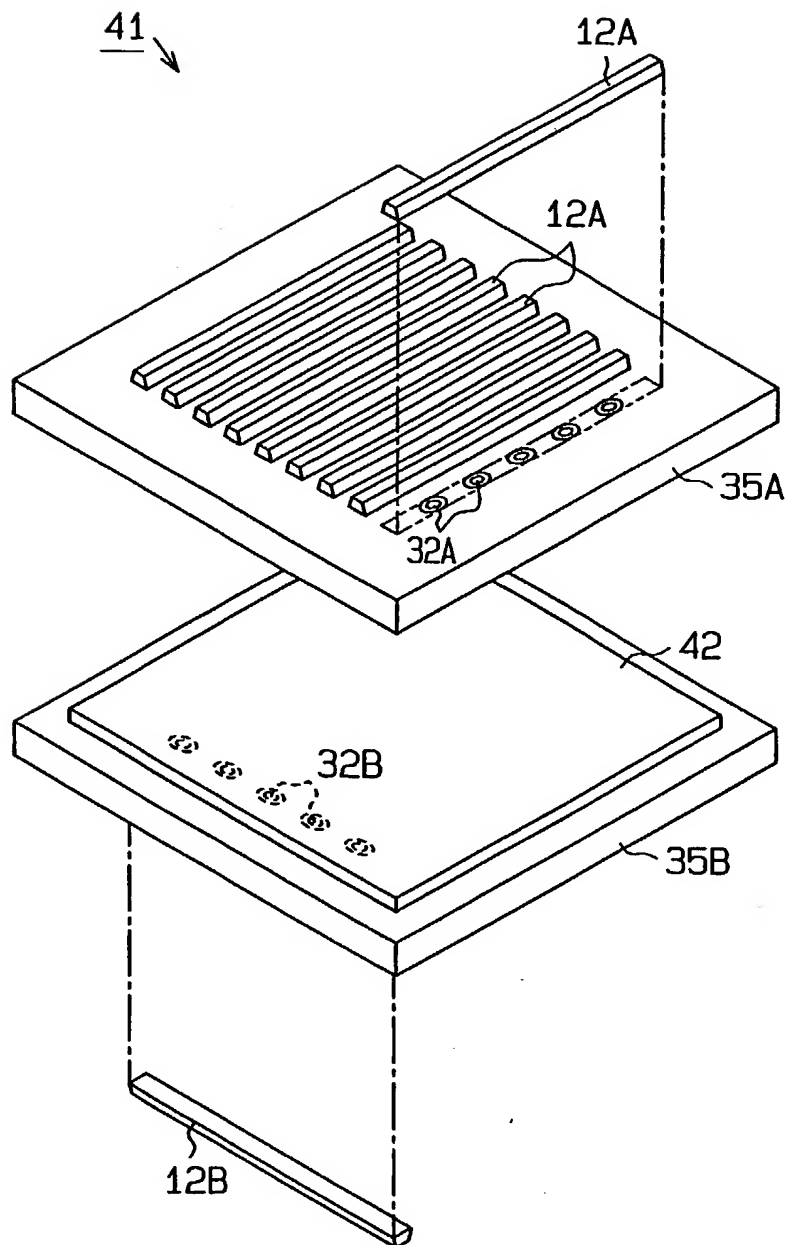


7/11

**Fig. 8**

8/11

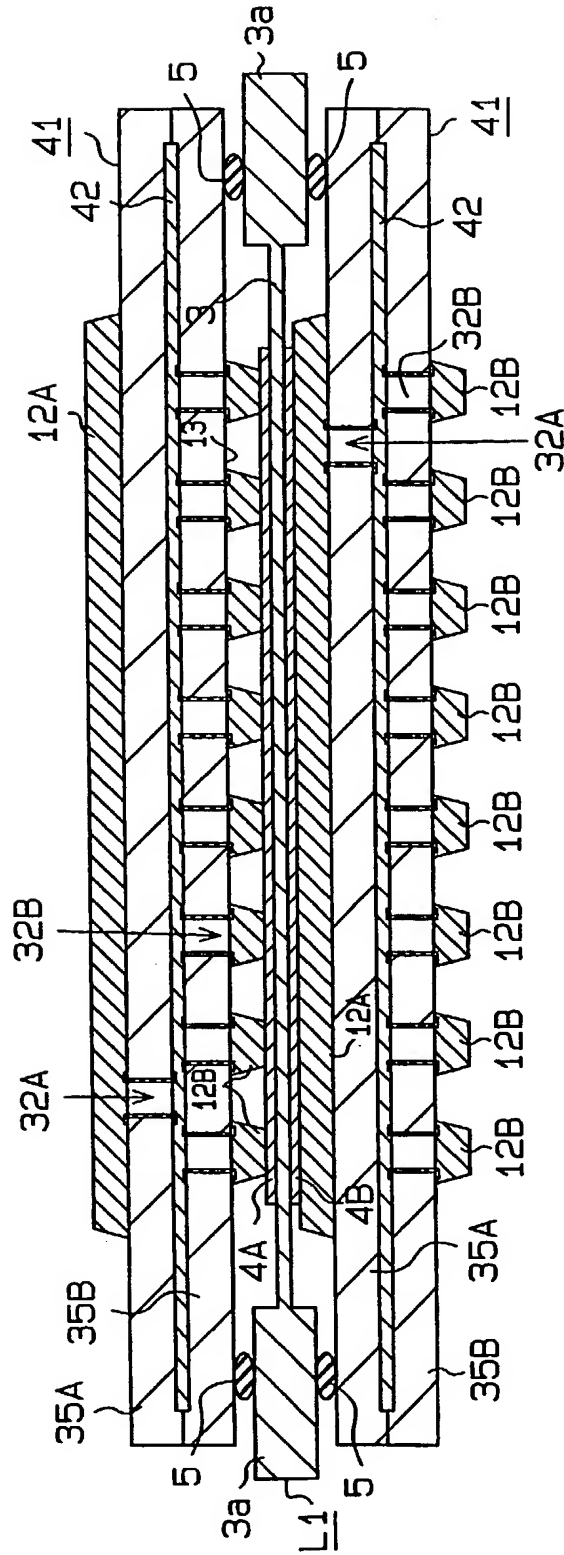
**Fig. 9**



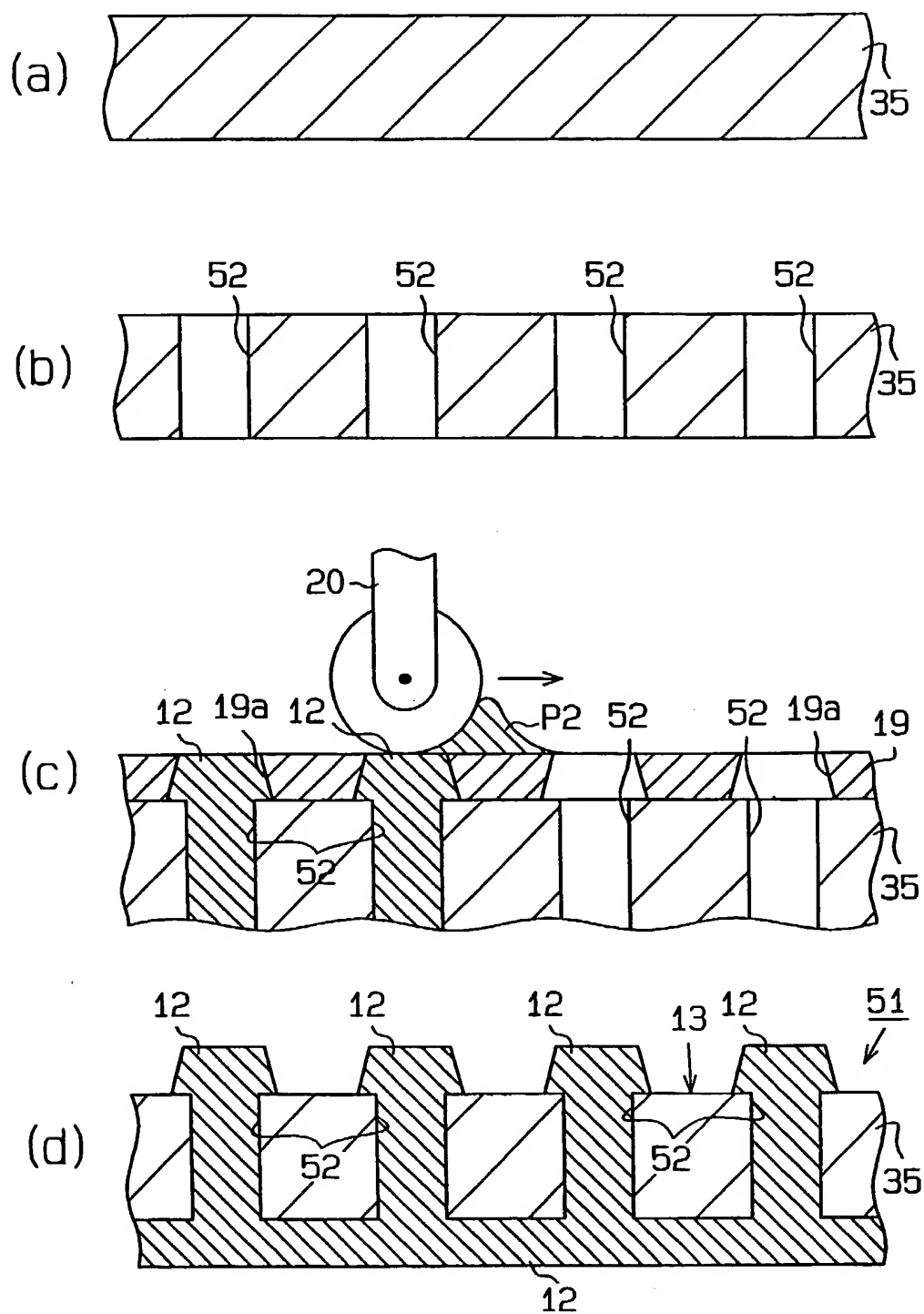
9/11

Fig.10

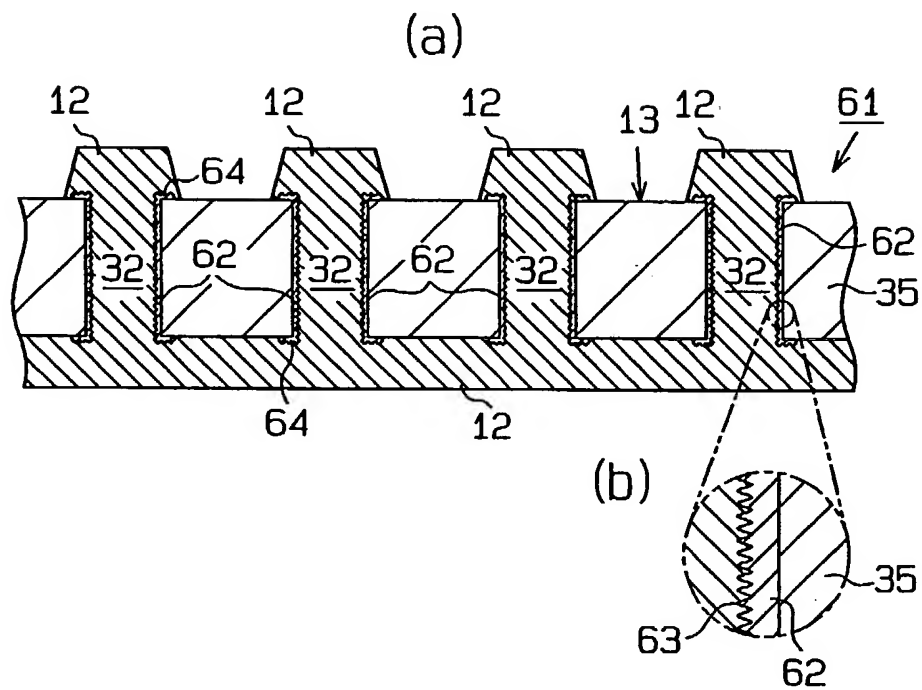
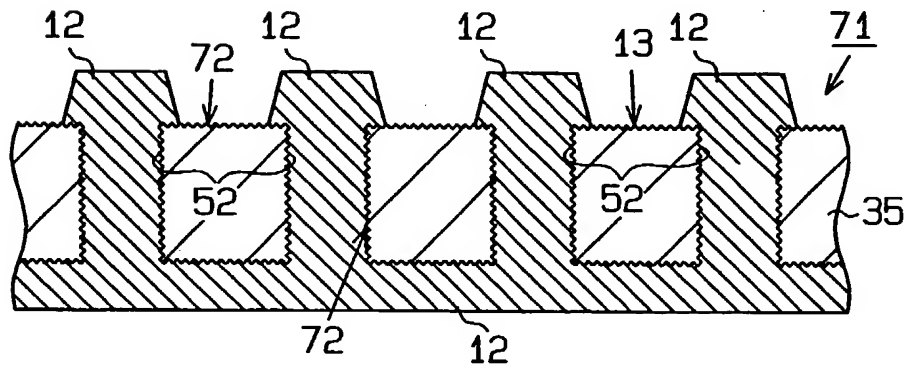
1



10/11

**Fig.11**

11/11

**Fig.12****Fig.13**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04098

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M 8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M 8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JOIS  
 DIALOG (WPI/L)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category*   | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No.                        |
|-------------|--|--|
| X<br>Y<br>A | JP, 7-272731, A (Mazda Motor Corporation),<br>20 October, 1995 (20.10.95),<br>Claims; Par. Nos. [0019] to [0030];<br>Figs.1-6 (Family: none)   | 1, 9, 11, 13<br>2, 9-11, 13-14<br>3-8, 12-13 |
| X<br>Y<br>A | WO, 97/50138, A1 (E.I.DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY),<br>31 December, 1997 (31.12.97),<br>Claims<br>& JP, 10-12246, A & EP, 956604, A1  | 1, 9, 11, 13<br>2, 9-11, 13-14<br>3-8, 12-13 |
| Y<br>A      | JP, 4-149966, A (Ishikawajima-Harima Heavy Industries<br>Co., Ltd.), 22 May, 1992 (22.05.92),<br>Claims; page 3, upper left column, line 9 to page 4, lower<br>left column, line 6; Figs. 1-3 (Family: none) | 2, 9-11, 13-14<br>3-8, 12-13                 |
| A           | JP, 8-273696, A (Mazda Motor Corporation),<br>18 October, 1996 (18.10.96) (Family: none)   | 3-8, 12-13                                   |
| A           | JP, 5-36425, A (The Tokyo Electric Power Company,<br>Incorporated),<br>12 February, 1993 (12.02.93) (Family: none)   | 5  |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not  
 considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing  
 date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is  
 cited to establish the publication date of another citation or other  
 special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other  
 means  
 "P" document published prior to the international filing date but later  
 than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or  
 priority date and not in conflict with the application but cited to  
 understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
 considered novel or cannot be considered to involve an inventive  
 step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
 considered to involve an inventive step when the document is  
 combined with one or more other such documents, such  
 combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
 19 September, 2000 (19.09.00)

Date of mailing of the international search report  
 03 October, 2000 (03.10.00)

Name and mailing address of the ISA/  
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04098

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------|
| P, X      | JP, 2000-133282, A (Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.), 12 May, 2000 (12.05.00), Claims; Figs.1~3 (Family: none) | 1~2, 9~11, 13~14      |



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M 8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M 8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS  
DIALOG (WPI/L)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示   | 関連する<br>請求の範囲の番号                                     |
|-----------------|---|--|
| X<br>Y<br>A     | JP, 7-272731, A (マツダ株式会社), 20. 10<br>月. 1995 (20. 10. 95), 特許請求の範囲、【001<br>9】～【0030】及び【図1】～【図6】 (ファミリーなし)                                 | 1, 9, 11, 13<br>2, 9～11, 13<br>～14<br>3～8, 12～<br>13 |
| X<br>Y<br>A     | WO, 97/50138, A1 (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND CO<br>MPANY), 31. December. 1997 (31. 12. 97), Claim<br>s & JP, 10-12246, A&EP, 956604, A1 | 1, 9, 11, 13<br>2, 9～11, 13<br>～14<br>3～8, 12～<br>13 |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日  
19. 09. 00

国際調査報告の発送日

03.10.00

国際調査機関の名称及びあて先  
日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
小川 進

4X 8414  
印

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |   |                       |
|-----------------------|---|-----------------------|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示   | 関連する<br>請求の範囲の番号      |
| Y                     | J P, 4-149966, A (石川島播磨重工業株式会社), 2  | 2, 9~11, 13           |
| A                     | 2. 5月. 1992 (22. 05. 92), 特許請求の範囲、第3<br>頁左上欄第9行~第4頁左下欄第6行及び第1~3図 (ファミリー<br>なし)                      | ~14<br>3~8, 12~<br>13 |
| A                     | J P, 8-273696, A (マツダ株式会社), 18. 10<br>月. 1996 (18. 10. 96) (ファミリーなし)                                | 3~8, 12~<br>13        |
| A                     | J P, 5-36425, A (東京電力株式会社) 12. 2月. 1<br>993 (12. 02. 93) (ファミリーなし)                                  | 5                     |
| P, X                  | J P, 2000-133282, A (石川島播磨重工業株式会<br>社), 12. 5月. 2000 (12. 05. 00), 特許請求の範<br>囲及び【図1】~【図3】 (ファミリーなし) | 1~2, 9~<br>11, 13~14  |